

27.06.03

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 6 月 2 8 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 1 9 0 6 8 9
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 1 9 0 6 8 9]

出 願 人 花 王 株 式 会 社
Applicant(s):

REC'D 15 AUG 2003

WIPO

PCT

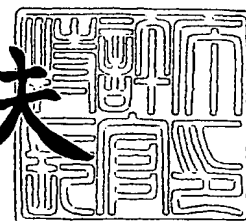
PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

2 0 0 3 年 7 月 3 1 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 P03111406

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A23F 3/00

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 塩屋 靖

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都墨田区文花 2-1-3 花王株式会社研究所内

 【氏名】 草浦 達也

【特許出願人】

 【識別番号】 000000918

 【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

 【識別番号】 110000084

 【氏名又は名称】 特許業務法人アルガ特許事務所

 【代表者】 有賀 三幸

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 164232

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 飲料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 次の成分 (a)、(b) 及び (c) :

(a) イソクロロゲン酸類を含むクロロゲン酸類混合物 (ここで、成分 (a) 中のイソクロロゲン酸類含有重量比率は $1/3 \sim 1/20$ である) 0.05 ~ 10 重量%、

(b) ヒドロキシカルボン酸 成分 (a) に対して 5 ~ 30 重量倍かつ飲料中に 0.25 ~ 15 重量%、

(c) 水 30 ~ 99.7 重量%
を含有する飲料。

【請求項 2】 pH が 2 ~ 5 である請求項 1 記載の飲料。

【請求項 3】 糖度 (Brix) が 0.01 ~ 20 である請求項 1 又は 2 記載の飲料。

【請求項 4】 成分 (a) が、植物抽出物である請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の飲料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、血圧降下作用等の生理効果を有し、味が良好で、かつ保存安定性の良好な飲料に関する。

【0002】

【従来の技術】

狭心症、心筋梗塞、心不全などの心疾患あるいは脳梗塞、脳出血、クモ膜下出血などの脳血管疾患は、高血圧と非常に深い関係があり、日本人の死因のそれぞれ第二位と第三位を占める。また、厚生省国民生活基礎調査 (平成 10 年度) によれば、高血圧症で通院する患者数は我が国で千人あたり 64 人であり、病因の第一位を占めている。高血圧の対策としては、利尿薬、交感神経抑制薬、血管拡張薬、アンジオテンシン交換酵素阻害薬などの血圧降下医薬品が挙げられ、これ

らは主として重症高血圧患者に適用される。それに対して、食事療法、運動療法、飲酒・喫煙の制限などの生活習慣改善を目的とした一般療法は、軽症者から重症者までの高血圧者に広く適用されることから、一般療法の重要性が認識されている。なかでも食習慣の改善は重要であるといわれ、伝承として血圧降下作用を有すると言われる食品は数多く存在する。また従来から食品由来の血圧降下素材の探索が盛んに行われ、血圧降下作用を有する有効成分の分離・同定が数多くなされている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本出願人は食物素材の中から血圧降下作用を有する成分を検討し、クロロゲン酸類に優れた血圧降下作用があることを見出した（特開 2002-53464、特開 2002-87977）。しかしながら、クロロゲン酸類は、飲食品、特に飲料に配合した場合、苦味や渋味を与えるという問題があった。この苦味や渋味は、飲料において特に著しく、飲料を連続して飲用することが困難であった。

従って本発明の目的は、血圧降下作用を有するクロロゲン酸類を高濃度含有し、かつ味が良好で毎日飲用でき、かつ保存安定性の良好な飲料を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】

そこで本発明者は、クロロゲン酸類に対して一定量のヒドロキシカルボン酸を配合し、かつクロロゲン酸類中のイソクロロゲン酸量を一定範囲に調整すると、渋味や苦味が改善され、フレッシュな味で飲用し易く、かつ長期間安定な飲料が得られることを見出した。

【0005】

すなわち、本発明は、次の成分（a）、（b）及び（c）：

（a）イソクロロゲン酸類を含むクロロゲン酸類混合物（ここで、成分（a）中のイソクロロゲン酸類含有重量比率は $1/3 \sim 1/20$ である） 0.05～10重量%、

（b）ヒドロキシカルボン酸 成分（a）に対して 5～30重量倍、かつ飲

料中に 0.25～10 重量%、

(c) 水 30～99.7 重量%

を含有する飲料を提供するものである。

【0006】

【発明の実施の形態】

本発明の容器詰飲料に用いられるクロロゲン酸類混合物（成分（a））には、イソクロロゲン酸、ネオクロロゲン酸、クリプトクロロゲン酸などのクロロゲン酸類及びそれらの誘導体が含まれる。ここで、クロロゲン酸は、キナ酸の 5 位の水酸基にカフェー酸がエステル結合した 5-カフェオイルキナ酸であり、クリプトクロロゲン酸は、キナ酸の 4 位の水酸基にカフェー酸がエステル結合した 4-カフェオイルキナ酸であり、ネオクロロゲン酸は、キナ酸の 3 位の水酸基にカフェー酸がエステル結合した 3-カフェオイルキナ酸である。イソクロロゲン酸は、キナ酸の 3 位、4 位及び 5 位の水酸基のうちの 2 つの水酸基にカフェー酸がエステル結合したジカフェオイルキナ酸（例えば 3, 4-ジカフェオイルキナ酸、3, 5-ジカフェオイルキナ酸、4, 5-ジカフェオイルキナ酸）である。その他のクロロゲン酸類としては、キナ酸の 3 位、4 位及び 5 位の水酸基のうちの 1 つの水酸基にフェルラ酸がエステル結合したフェルリルキナ酸（例えば、5-フェルリルキナ酸）、キナ酸の 3 位、4 位及び 5 位の水酸基のうちの 2 つの水酸基にカフェー酸とフェルラ酸がエステル結合したフェルリルカフェオイルキナ酸（例えば 3-フェルリル-4-カフェオイルキナ酸）などである。また、イソクロロゲン酸類、クロロゲン酸類等の誘導体としては、塩、糖エステル等の生理学的に許容されるものが挙げられる。このうち、イソクロロゲン酸類、クロロゲン酸類等の塩としては、ナトリウム塩、カリウム塩、カルシウム塩、マグネシウム塩等のアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩が挙げられる。

【0007】

成分（a）としては、植物抽出物が好ましい。成分（a）は単一植物又は植物の混合物のいずれかから抽出することができる。このうち、シソ、ヒマワリ、ヨモギ、サツマイモ、コーヒー生豆、南天の葉、リンゴ未熟果等の植物体から抽出したものが好ましく、さらにコーヒー生豆抽出物、特にアカネ科コーヒー（Coff

ea arabica LINNE) の種子より、温時アスコルビン酸、クエン酸酸性水溶液又は熱水で抽出して得られたものが好ましい。また抽出物を利用した成分 (a) の化学修飾物をブレンドして使用してもよい。

【0008】

成分 (a) 中のイソクロロゲン酸量、すなわち成分 (a) 中のイソクロロゲン酸類含有重量比率は、 $1/3 \sim 1/20$ であるが、 $1/4 \sim 1/15$ がより好ましく、 $1/5 \sim 1/10$ がさらに好ましい。この含有重量比率が $1/3$ を超えると渋味や苦味が十分改善できず、一方、 $1/20$ 未満だと飲料の安定性が良くない。含有重量比率の調整は、クロロゲン酸類の含有量の相違する植物抽出液をブレンドする方法；カラム分離、抽出、化学合成等によるクロロゲン酸類を用い、前記植物抽出物とブレンドする方法；特開平 9-9603 号記載のように樹脂への吸着・脱着処理等によりクロロゲン酸類を選択的に溶出し、これを前記植物抽出物とブレンドする方法等により行うことができる。

【0009】

本発明飲料中の成分 (a) の含有量は、0.05～10 重量%であるが、0.07～5.0 重量%、特に 0.10～1.0 重量%が好ましい。成分 (a) の含有量が 0.05 重量%未満では十分な降圧効果が得られず、10 重量%を超えると成分 (a) による渋味や苦味が強くなる。

【0010】

本発明飲料に用いられるヒドロキシカルボン酸 (成分 (b)) としては、分子量 60～300 のヒドロキシカルボン酸、例えば、乳酸、クエン酸、グルコン酸、グリコール酸、リンゴ酸、酒石酸、アスコルビン酸等が挙げられる。これらのヒドロキシカルボン酸には、化学合成品の他、天然物、特に植物中に本来含有されているもの、抽出及び／又は分画の際の化学的処理によって変換したもの、及び化学的修飾を行ったものなども含まれる。この天然物に由来するものとしては、例えば日本農林規格で定められる醸造酢等あるいはその抽出物等が挙げられる。ここでいう醸造酢とは、酢酸発酵により作られた食酢を指し、具体的にはコメや他の穀物を原料とする穀物酢、例えば玄米と麴を原料として一段発酵による静置法醸造で作られる「くろず」と呼ばれる穀物酢等、リンゴやブドウあるいはそ

の他の果実を原料とする果実酢、穀物酢と果実酢以外の醸造酢等が挙げられる。また、果汁あるいはその抽出物を用いることができ、具体的には、オレンジ、ミカン、リンゴ、ブドウ、パイナップル、ピーチ、グレープフルーツ、レモン、和ナシ、洋ナシ、ウメ、ネーブル、イチゴ、パッションフルーツ、メロン、ライム、グアバ、アンズ、シークワーシャー、カボス、ポンカン、イヨカン、ハッサク、クランベリー、バナナ、スモモ、マンゴー、キウイフルーツ、カキ、アセロラ等の果汁、あるいはこれらの混合果汁、濃縮物、あるいはこれらの水、エタノール、メタノール、酢酸、クロロホルム、ジクロロメタン、酢酸エチル、n-ヘキサン、アセトン、ベンゼン、石油エーテル、エーテル等による抽出物等を挙げることができる。特に水、エタノール抽出物が好ましい。

【0011】

本発明飲料中の成分（b）の含有量は、成分（a）に対して5～30重量倍であるが、5～20重量倍、特に5～15重量倍が好ましい。また、成分（b）の飲料中の含有量は0.25～15重量%であるが、0.25～10重量%、特に0.35～5重量%が好ましい。成分（b）の含有量が成分（b）の5重量倍未満又は飲料中に0.25重量%未満では、成分（b）による渋味、苦味改善効果が得られず、30重量倍又は15重量%を超えると酸味が強くなりすぎ、長期間飲用するのに適さない。

【0012】

本発明飲料には水（成分（c））を30～99.7重量%、好ましくは40～99.7重量%、より好ましくは50～99.7重量%含有する。水の含有量が30重量%未満では、味が好ましくなく、配合する上でも溶解し難く好ましくない。

【0013】

本発明の飲料のpHは生理効果を有する成分（a）の長期安定性の点から2～5、さらに2.5～5、特に3.0～5.0が好ましい。また炭酸飲料とする場合のpHは2.5～4.0、さらに3.0～4.0が好ましい。本発明飲料のpHの調整は食用酸又は有機食用酸の添加によって行われる。使用可能な食用有機酸としては前記ヒドロキシカルボン酸の他、フマル酸、アジピン酸、酢酸又はそれらの

混合物が挙げられる。これらの酸はそれらの非解離形でも又はそれら各々の塩としても存在することができる。塩としては、ナトリウム塩、カリウム塩、リチウム塩、カルシウム塩、マグネシウム塩等の薬学上許容される塩が挙げられる。

【0014】

本発明の飲料には、甘味料、フレーバー成分、増量剤、乳化剤、エマルション安定剤等を配合することができる。ここで甘味料としては、単糖、2糖甘味料、糖アルコール、無カロリー甘味料等が挙げられる。単糖、2糖類としてはスクロース、グルコース、フルクトース、高フルクトースコーンシロップ、転化シロップ、精製シロップ、コーンシロップ、マルトース、高マルトースシロップ及びそれらの混合物が挙げられる。好ましい糖類はスクロース及び高フルクトースコーンシロップである。糖アルコールとしてはソルビトール、マンニトール及びキシリトールが挙げられる。無カロリー甘味料の例としてはアスパルテム、サッカリン、シクラメート類、アセトスルファム、L-アスパルチル-L-フェニルアラニン低級アルキルエステル甘味料、L-アスパルチル-D-アラニンアミド類（米国特許第4,411,925号）、L-アスパルチル-D-セリンアミド類（米国特許第4,399,163号）、L-アスパルチルヒドロキシメチルアルカンアミド甘味料（米国特許第4,338,346号）、L-アスパルチル-1-ヒドロキシエチルアルカンアミド甘味料（米国特許第4,423,029号）、グリセリン類、合成アルコキシ芳香族等が挙げられる。これらの甘味料は、糖度（Brix）が0.01~20、さらに0.1~20、特に3~15となるように配合するのが好ましい。Brixが20を超えると、甘すぎて飲みにくい。

【0015】

フレーバー成分としては、フルーツフレーバー、植物フレーバー及びそれらの混合物から選択される天然又は人工フレーバーが挙げられる。

【0016】

乳化剤及びエマルション安定剤の例としては、臭素化植物油、ロジンエステル、ガム、ペクチン類、セルロース、ポリソルベート類、ソルビタンエステル類及びプロピレングリコールアルギネート類が挙げられる。

【0017】

本発明の飲料は、例えば成分（a）、（b）、（c）及びその他の成分を混合し、容器に充填し、殺菌して製造することができる。なお殺菌手段はレトルト殺菌、UHT殺菌のいずれでもよい。ここで容器としては、金属缶、PETボトル、紙パック、チューブパック、ビン等が挙げられる。

【0018】

本発明の飲料の形態としては、果汁又は野菜汁添加のジュース飲料、炭酸入り清涼飲料、果汁等の添加の少ない又はない清涼飲料、チューブパックに入ったゼリー飲料等が挙げられる。

【0019】

【実施例】

以下の実施例においてヒドロキシカルボン酸及びクロロゲン酸類の分析は次のようにして行った。

ヒドロキシカルボン酸の分析法

厚生省環境衛生局食品化学課編：“食品中の食品添加物分析法”講談社サイエントフィク（1998. 8. 1 第6刷）に準じ、ガスクロマトグラフィー法により定量する。

クロロゲン酸類の分析法

ODS-2逆相カラムを用い、溶離液A（0.05M酢酸 3vol%アセトニトリル水溶液）と溶離液B（0.05M酢酸 100vol%アセトニトリル溶液）にてグラジエントをかけて溶出した。標準品とRTを比較し、同定した。

【0020】

実施例1～7及び比較例1～6

表1及び表2の組成の飲料を調製し、下記項目を評価した。

1. 味（苦味、渋味、異味）

習熟したパネル10人を選んで官能評価を行った。

この場合、対照としてはクロロゲン酸類を添加していないプラセボ飲料を使用し、香味を評価した。その結果は表1及び表2のとおりである。

なお、表1及び表2中の評価の点数は、下記の基準で採点（1～4点）した各パネルの平均点である。（採点基準）渋味、苦味、異味を非常に強く感じる：4

点、渋味、苦味、異味を強く感じる：3点、渋味、苦味、異味を感じる：2点、
渋味、苦味、異味を若干感じる：1点、渋味、苦味、異味を感じない：0点

2. おり発生抑制

透明の100mLびんに移し、ふたをしっかりとした後。

80℃に加熱したあと、25℃の部屋に放置徐冷した。

24時間後に、軽く振っておりの発生を評価した。

評点 ○ おりはみられない

△ やや見られる

× はっきりとおりの発生が確認される

【0021】

【表1】

		実 施 例						
		1	2	3	4	5	6	7
(a)	(クロロゲン酸含有物)	470mg ^{*1}	470mg ^{*1}	235mg ^{*5}	470mg ^{*5}	3290mg ^{*5}	6580mg ^{*5}	470mg ^{*5}
	イソクロロゲン酸	10mg	10mg	10mg	20mg	140mg	250mg	20mg
	クロロゲン酸総量	140mg	140mg	70mg	140mg	980mg	1960mg	140mg
	イソクロロゲン酸比	1/14	1/14	1/7	1/7	1/7	1/7	1/7
(b)	クエン酸	350mg	300mg	350mg	—	2400mg	4800mg	250mg
	リンゴ酸	100mg	—	100mg	300mg	600mg	1400mg	100mg
	クエン酸Na	350mg	350mg	350mg	350mg	2400mg	4800mg	450mg
	(b)/(a)	5.7	5.4	11.4	5.4	5.6	5.6	5.3
(c)	水	バランス ^{*8}	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス
	リンゴ果汁 ^{*2}	—	4.4g	—	4.4g	4.4g	—	—
	リンゴポリフェノール ^{*3}	—	—	—	—	—	—	—
	果糖ブドウ糖 ^{*4}	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g
	香料	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g
	pH	3.8	4.0	3.8	4.0	4.0	3.8	4.5
	B r i x	1.21	3.41	1.38	3.75	5.86	6.11	1.55
評 価	味	0	0	0	0	1	1~2	1
	おり発生	○	○	○	○	○	○	○

*1: ヒマワリ抽出物 *2: 青森アップルジュース、5倍濃縮品(リンゴ酸2.5%)

*3: ニッカウエスキー、アップルフェノン粉末50 *4: 愛媛県農業協同組合連合会

*5: 生コーヒー豆抽出物 *6: イソクロロゲン酸(ジカフエオイルキナ酸、単離抽出物)

*7: クロロゲン酸(5-カフエオイルキナ酸、アルドリッチ製) *8: 全量を100gとする量

【0022】

【表 2】

		比較例					
		1	2	3	4	5	6
(a)	(クロロゲン酸含有物)	245mg ^{*5} +70mg ^{*6}	140mg ^{*7}	375mg ^{*5}	70mg ^{*7}	470mg ^{*1}	360mg ^{*5}
	イソクロロゲン酸	80mg	—	8mg	—	10mg	15mg
	クロロゲン酸総量	140mg	140mg	52mg	70mg	140mg	105mg
	イソクロロゲン酸比	8/14	0	2/13	0	1/14	1/7
(b)	クエン酸	—	300mg	2000mg	—	—	300mg
	リンゴ酸	800mg	—	—	—	—	アスコルビン酸30mg
	クエン酸Na	—	—	—	—	400mg	20mg
	(b) / (a)	5.7	2.1	38.5	1.6	2.8	3.3
(c)	水	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス	バランス
	リンゴ果汁 ^{*2}	—	4.4g	4.4g	4.4g	—	—
	リンゴポリフェノール ^{*3}	—	—	—	70mg	—	—
	果糖ブドウ糖 ^{*4}	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g	1.5g
	香料	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g	0.1g
	pH	2.5	4.0	1.5	4.0	6.0	3.0
	Brix	1.39	3.40	3.69	3.40	1.21	1.47
評価	味	4	0	3	3	4	3
	おり発生	○	×	○	×	×	○

^{*1}: ヒマワリ抽出物 ^{*2}: 青森アップルジュウス、5倍濃縮品(リンゴ酸2.5%)
^{*3}: ニッカウエスキー、アップルフェノール粉末50 ^{*4}: 愛媛県農業協同組合連合会
^{*5}: 生コーヒー豆抽出物 ^{*6}: イソクロロゲン酸(ジカフエオイルキナ酸、単離抽出物)
^{*7}: クロロゲン酸(5-カフエオイルキナ酸、アルドリッチ製)

【0023】

表1及び表2から明らかなように、成分(a)中のイソクロロゲン酸量が1/3よりも多い場合(比較例1)は、味が苦く、渋いものであり、一方、当該イソクロロゲン酸量が1/20よりも少ない場合(比較例2、比較例4)は、おりが

発生し飲料として適さなかった。また、成分 (b) が成分 (a) に対して 30 重量倍を超える場合 (比較例 3) は、味がすっぱすぎ、長期間飲用には適さなかった。

【0024】

これに対し、本発明飲料は、味も良好でかつおりの発生もなく長期間安定であった。

【0025】

実施例 8 ゼリー状飲料

ローカストビーンガム 0.35 重量%、グレープフルーツの 50% 濃縮果汁 (Brix 18) 30.0 重量%、クエン酸 1.4 重量%、クエン酸 Na 1.1 重量%、コーヒー豆抽出物 (長谷川香料(株)製フレーバーホルダー (クロロゲン酸類混合物 30 重量%、イソクロロゲン酸:クロロゲン酸類混合物 = 0.16/1)) 1.8 重量%を混合し、果糖ブドウ糖 16 重量%、さらに水を加えて 100 重量%に調整し、65℃で溶解した。さらに少量のグレープフルーツフレーバーを添加して 85℃で 5 分間保持して殺菌処理後、100mL の容器に分注した。8 時間静置して徐冷しながら 5℃に冷却して、ゲル化させ、口に含んだ時に口溶性が良好で、果実風味を有し食感良好なゼリー状飲料を得た。(Brix 17.5)

【0026】

実施例 9 果汁飲料 (Brix 11)

オレンジ果汁 70 重量%

人参汁 25 重量%

コーヒー豆抽出物 (長谷川香料(株)製フレーバーホルダー、(実施例 5 と同じ)) 0.4 重量%

レモン果汁 1 重量%

はちみつ 1.5 重量%

香料 0.1 重量%

水 2.0 重量%

(クロロゲン酸、ヒドロキシカルボン酸量 (分析値))

クロロゲン酸総量 120mg うちイソクロロゲン酸 20mg (1/6)

クエン酸およびその塩 700mg

リンゴ酸およびその塩 100mg

水分 82.2g

上記組成の飲料は保存安定性も高く、また、風味もよく美味であった。

【0027】

【発明の効果】

本発明によれば、安定した血圧降下作用を有し、かつ味が良好で長期保存安定性の良好な飲料が得られる。

【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 次の成分 (a)、(b) 及び (c) :

(a) イソクロロゲン酸類を含むクロロゲン酸類混合物 (ここで、成分 (a) 中のイソクロロゲン酸類含有重量比率は $1/3 \sim 1/20$ である) 0.05 ~ 10 重量%、

(b) ヒドロキシカルボン酸 成分 (a) に対して 5 ~ 30 重量倍かつ飲料中に 0.25 ~ 15 重量%、

(c) 水 30 ~ 99.7 重量%
を含有する飲料。

【効果】 本発明によれば、安定した血圧降下作用を有し、かつ味が良好で長期保存安定性の良好な飲料が得られる。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2002-190689
受付番号	50200954740
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成14年 7月 1日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成14年 6月28日
-------	-------------

次頁無

特願 2002-190689

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000000918]

- | | |
|----------|-----------------------|
| 1. 変更年月日 | 1990年 8月24日 |
| [変更理由] | 新規登録 |
| 住 所 | 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号 |
| 氏 名 | 花王株式会社 |
| | |
| 2. 変更年月日 | 2003年 4月18日 |
| [変更理由] | 名称変更 |
| | 住所変更 |
| 住 所 | 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号 |
| 氏 名 | 花王株式会社 |